

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-113698

(43)Date of publication of application : 07.05.1996

---

(51)Int.Cl. C08L 63/04

C08G 59/18

C08K 5/15

C08K 5/3445

C08L 63/00

C08L 83/04

---

(21)Application number : 06-251118 (71)Applicant : MEIDENSHA CORP

(22)Date of filing : 18.10.1994 (72)Inventor : OKIYOKOTA MASAO

NISHIZAWA TORU

HAMAMURA TAKEHIRO

---

(54) HEAT-RESISTANT DRIP-FEED IMPREGNATING RESIN

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a heat-resistant drip-feed impregnating resin which is curable in a short period of time and capable of having a higher maximum

permissible temperature and whose cured products cause no cracking by heating under stirring a main ingredient comprising a bisphenolic epoxy resin and various physical property improvers together with a curing agent and curing accelerator.

CONSTITUTION: This resin composition is prepared by heating and stirring a main ingredient comprising 40-75 pts.wt. (hereinafter merely pts.) of a bisphenolic epoxy resin (A), 10-40 pts. of a cresol-novorak epoxy resin (B) for improving thermal resistance, 10-40 pts. of an alicyclic epoxy resin (C) for enhancing mechanical strength and temperature characteristics and 5-30 pts. of a silicone powder for imparting flexibility, together with a curing agent and curing accelerator (E). The resin can have a shortened curing time and enhanced maximum permissible temperature, so that it is excellent in versatility, evolves no cracks in its cured products, and satisfies mechanical strength and temperature characteristics.

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's  
decision of rejection]

[Kind of final disposal of application  
other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

\* NOTICES \*

**JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] Heat-resistant dropping impregnating resin characterized by having used the cresol novolak mold epoxy resin for raising thermal resistance to a bisphenol mold epoxy resin as base resin, the annular aliphatic series mold epoxy resin for raising a mechanical strength and the temperature characteristic, and the silicone powder for giving flexibility, having heated and agitated this base resin and obtaining it with a curing agent and a hardening accelerator.

[Claim 2] Heat-resistant dropping impregnating resin according to claim 1 which made the annular aliphatic series mold epoxy resin ten to 40% of the weight ten to 40% of the weight, and made [ the above-mentioned bisphenol mold epoxy resin ] silicone powder 5 - 30% of the weight of the blending ratio of coal for the cresol novolak mold epoxy resin 40 to 75% of the weight.

[Claim 3] Claim 1, heat-resistant dropping impregnating resin of two publications replace with the silicone powder for giving the above-mentioned flexibility, and using denaturation silicone or silicone gel.

[Claim 4] Heat-resistant dropping impregnating resin characterized by having used the cresol novolak mold epoxy resin for raising thermal resistance to a bisphenol mold epoxy resin as base resin, the annular aliphatic series mold epoxy resin for raising a mechanical strength and the temperature characteristic,

and the silicone gel for giving flexibility, having heated and agitated this base resin and obtaining it with the polyether denaturation silicone, and the curing agent and the hardening accelerator as a dispersant.

[Claim 5] while using tetrahydro free-wheel-plate rucksack anhydride as a curing agent added to the above-mentioned dropping impregnating resin -- as a hardening accelerator -- 4 and 4'-methylenebis - (2-ethyl-5-methyl imidazole) -- using -- a curing agent -- base resin -- receiving -- 0.8-1.2 mols -- comparatively - - carrying out -- a hardening accelerator -- base resin -- receiving -- the heat-resistant dropping impregnating resin of 0.5 - 5% of the weight of claims 1, 2, and 3 and four publications which were carried out comparatively.

[Claim 6] claims 1, 2, 3, and 4 mixed and added so that 1:1 might look like [ the above-mentioned dropping impregnating resin ] a curing agent and a hardening accelerator comparatively by the weight ratio and it might become it, and the heat-resistant dropping impregnating resin of five publications.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

**JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the heat-resistant dropping impregnating resin of the short-time hardenability used as a charge of insulating material of various electrical machinery and apparatus.

[0002]

[Description of the Prior Art] Desire of the development of the heat-resistant dropping impregnating resin by which the setting time was generally shortened as resin for dropping sinking in from a viewpoint of there being a difficulty since these require the long time amount of [ by the time it hardens completely ] about 24 hours, when raising the productive efficiency of various electrical machinery and apparatus, and raising especially productivity although the thing with a highest allowable temperature of 180 degrees C or more usually called heat-resistant C kind was marketed is carried out.

[0003] Although there is resin of the epoxy system which can be hardened in about 2 - 3 hours as dropping impregnating resin which can be hardened on the other hand in a short time, the resin which versatility was low and raised the highest allowable temperature in connection with miniaturization and high increase in power of various electrical machinery and apparatus since these were things with a highest allowable temperature of 155 degrees C it is said that is F sorts of thermal resistance, and was excellent in versatility is called for.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Since the hardened material which has various properties by it not only excelling in the adhesive property at the electrical-characteristics list, but solving the chemical structure of resin itself and a curing agent, and choosing an ingredient is obtained, the resin of an epoxy system known as a short material of the setting time from the former attracts attention as heat-resistant dropping impregnating resin of short-time hardenability.

[0005] However, the brittle thing serves as a difficulty in respect of the mechanical strength, and the hardened material of dropping impregnating resin using this epoxy system resin as a material serves as a trouble when there is \*\*\*\* which a crack generates in this hardened material and the dependability of an

electrical machinery and apparatus is maintained to altitude in the especially heat-resistant high thing.

[0006] It aims at offering the heat-resistant dropping impregnating resin with which are satisfied of a mechanical strength and the temperature characteristic, without raising the highest allowable temperature, excelling also in versatility, and moreover a crack etc. occurring in a hardened material, while this invention is made in view of the above-mentioned point and being able to aim at compaction of the setting time.

[0007]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned purpose, this invention uses the cresol novolak mold epoxy resin for raising thermal resistance to a bisphenol mold epoxy resin as base resin, the annular aliphatic series mold epoxy resin for raising a mechanical strength and the temperature characteristic, and the silicone powder for giving flexibility by claim 1, and offers the heat-resistant dropping impregnating resin which heated and agitated this base resin and obtained it with the curing agent and the hardening accelerator.

[0008] Let an annular aliphatic series mold epoxy resin, and let [ the above-mentioned bisphenol mold epoxy resin ] silicone powder be 5 - 30% of the weight of the blending ratio of coal ten to 40% of the weight ten to 40% of the weight for a cresol novolak mold epoxy resin 40 to 75% of the weight. Furthermore, it replaces with the silicone powder for giving flexibility, and the example using denaturation silicone or silicone gel is offered.

[0009] By claim 4, the cresol novolak mold epoxy resin for raising thermal resistance to a bisphenol mold epoxy resin as base resin, the annular aliphatic series mold epoxy resin for raising a mechanical strength and the temperature characteristic, and the silicone gel for giving flexibility are used, and the heat-resistant dropping impregnating resin which heated and agitated this base resin and obtained it with the polyether denaturation silicone, and the curing agent and the hardening accelerator as a dispersant is offered.

[0010] furthermore -- while using tetrahydro free-wheel-plate rucksack anhydride

as a curing agent added to dropping impregnating resin -- as a hardening accelerator -- 4 and 4'-methylenebis - (2-ethyl-5-methyl imidazole) -- using -- \*\*\*\*  
-- a curing agent -- base resin -- receiving -- 0.8-1.2 mols -- comparatively --  
carrying out -- a hardening accelerator -- base resin -- receiving -- 0.5 - 5 % of  
the weight -- it carries out comparatively. moreover, it mixes and adds so that 1:1  
may look like [ the above-mentioned dropping impregnating resin ] a curing agent  
and a hardening accelerator comparatively by the weight ratio and it may  
become it.

[0011]

[Function] According to this heat-resistant dropping impregnating resin, when the  
addition of the silicone powder as a flexible grant agent, denaturation silicone, or  
silicone gel increased, the inclination for a heat-resistant temperature  
characteristic to fall was seen, but even if the addition of this flexible grant agent  
reached to 30%, a heat-resistant temperature characteristic is 280 degrees C or  
more, and what can respond to the dropping impregnating resin called the usual  
heat-resistant C kind was obtained.

[0012] Moreover, according to the crack-proof sex test of the obtained hardened  
material, to the characteristic average of the hardened material sample only  
using the conventional epoxy resin having been 3.8, the characteristic average of  
the hardened material which applied this example is 11, and being sharply  
improved in respect of a mechanical strength and the temperature characteristic  
was checked.

[0013] Furthermore, the hardened material by this example is far shortened as  
compared with the gel time when the gel time which is time amount until dropping  
impregnating resin solidifies completely from a half-melting condition uses only  
the conventional epoxy resin, consequently the processing time at the time of  
being able to aim at compaction of the setting time and applying to the production  
process of various electrical machinery and apparatus is shortened sharply, and  
remarkable operation that the productivity of these devices is raised is acquired.

[0014]

[Example] The various concrete examples of the heat-resistant dropping impregnating resin applied to this invention below are explained. In this example, as base resin, the setting time adopts the ingredient which raises the ingredient, the mechanical strength, and the temperature characteristic which raise thermal resistance to short epoxy system resin, and the ingredient which gives flexibility, and is considering the heat-resistant dropping impregnating resin which heated and agitated this base resin and obtained it with the curing agent and the hardening accelerator as the basic configuration. And in order to check the property of the obtained dropping impregnating resin, the check and crack-proof sex test of a hardened material property which were obtained were carried out.

[0015] If the manufacture approach of the 1st example of the dropping impregnating resin first applied to this invention is described As an ingredient which raises thermal resistance to a bisphenol mold epoxy resin (trade name Epicoat 828, weight-per-epoxy-equivalent = as an example 195) as base resin As an ingredient which raises a cresol novolak mold epoxy resin (the trade name YDCN701, weight-per-epoxy-equivalent = as an example 210), a mechanical strength, and the temperature characteristic Silicone powder (trade name KMP- as an example 594) is used as an ingredient which gives an annular aliphatic series mold epoxy resin (the trade name ELR4221, weight-per-epoxy-equivalent = as an example 140), and flexibility. It agitated everywhere, heating a quantum at the temperature of 80 degrees C for a stainless steel beaker, and dropping impregnating resin was obtained. In addition, that whose particle size is 0.1-5.0 micrometers as silicone powder was used.

[0016] 40 to 75% of the weight, ten to 40% of the weight, the blending ratio of coal of each above-mentioned component made the annular aliphatic series mold epoxy resin, and made [ for example, the bisphenol mold epoxy resin ] silicone powder 5 - 30 % of the weight ten to 40% of the weight for the cresol novolak mold epoxy resin.

[0017] Next, it agitated until it carried out optimum dose addition of 4 and 4'-methylenebis - (2-ethyl-5-methyl imidazole) (it is trade name cure ZORU as an



example 2E4 MZ-BIS) as a hardening accelerator and became homogeneity to the tetrahydro free-wheel-plate rucksack anhydride (trade name HN- as an example 2200, weight-per-epoxy-equivalent = 166) which is an acid anhydride as a curing agent. The curing agent was made into the rate of 0.8-1.2 mols to base resin, and the hardening accelerator was taken as 0.5 - 5% of the weight of the rate.

[0018] And it mixed so that it might become the rate of 1:1 to said base resin by the weight ratio about a curing agent and a hardening accelerator, and after fully agitating, the hardened material concerning this example was obtained by heating in a 130 degrees C - 200 degrees C temperature requirement for about 3 hours.

[0019] Next, the property of the obtained hardened material was checked. Drawing 1 is the graph which took the addition (% of the weight) of a flexible grant agent (silicone powder) along the axis of abscissa, took the heat-resistant temperature characteristic (TGI) by NEMA specification along the axis of ordinate, and was plotted.

[0020] According to drawing 1 , the inclination for a heat-resistant temperature characteristic to fall was seen, so that the addition of a flexible grant agent increased. However, even if the addition of a flexible grant agent reaches to 30%, a heat-resistant temperature characteristic is 280 degrees C or more, and it is understood that it is what can respond to dropping impregnating resin with a thermal resistance of 200 degrees C called the usual heat-resistant C kind.

[0021] Furthermore, the crack-proof sex test of the obtained hardened material was carried out. Table 1 shows the change, the test time, and the characteristic of temperature (degree C) as a trial condition in one to 12 cycle of the above-mentioned crack-proof sex test as a chart.

[0022]

[Table 1]

耐クラック性試験の条件

サイクル	試験状態(℃)	試験時間(分)	指数
1	※	—	0
2	25 → 5	10	1
3	5 → 25	30	2
4	25 → 15	10	3
5	−15 → 25	30	4
6	25 → −35	10	5
7	−35 → 25	30	6
8	25 → −55	10	7
9	−55 → 25	30	8
10	25 → −75	10	9
11	−75 → 25	30	10
12	※ ※	—	11

[0023] It is shown in the cycle 1 in Table 1 that it is the test condition which the cycle 2 covered said hardened material for 10 minutes from 25 (degree C) to 5 (degree C), and descended the no-load condition. It becomes a characteristic "1" when a crack does not occur in a hardened material in this cycle 2. The crack-proof sex test was carried out on the conditions shown all over the table from the cycle 3 to the cycle 11 below, it asked for the characteristic "2" - the characteristic "10", respectively, and all of a 11 or more-cycle test condition set the characteristic to "11" as a cycle 12.

[0024] In addition, when the above-mentioned crack-proof sex test was carried out by the hardened material sample only using the conventional epoxy resin for the comparison, it was checked to the characteristic average of two or more samples having been 3.8 that the characteristic average of the hardened material which applied this example had carried out clear [ of 11 i.e., the 11 or more-cycle test condition, ].

[0025] Furthermore, it was checked that the gel time [ in / in the hardened material by this example / the temperature of 120 degrees C ] of a gel time [ in / in a gel time / in / it is 10.5 minutes and / the temperature of 135 degrees C / 5.5 minutes and the temperature of 150 degrees C ] is 3.1 minutes. This gel time is

time amount until dropping impregnating resin solidifies completely from a half-melting condition, and being far shortened as compared with the gel time at the time of using only the conventional epoxy resin was checked. Next, it agitated having replaced with the above-mentioned silicone powder as an ingredient which gives flexibility as the 2nd example of this invention, and heating at the temperature of 80 degrees C like the above using the specified quantity of denaturation silicone (trade name XC96- as an example A4462, weight-per-epoxy-equivalent = 230), and dropping impregnating resin was obtained. The blending ratio of coal of the denaturation silicone in this 2nd example could be 5 - 30 % of the weight.

[0026] And it agitated until it carried out optimum dose addition of the same curing agent and same hardening accelerator as the 1st example and became homogeneity, and the hardened material which heats in a 130 degrees C - 200 degrees C temperature requirement for about 3 hours, and is applied to the 2nd example was obtained. When the property of the obtained hardened material was checked, the almost same hardened material property as the 1st example and the crack-proof engine performance were obtained fundamentally.

[0027] It was checked that the gel time [ in / in the hardened material by \*\*\*\* 2 example / the temperature of 120 degrees C ] of a gel time [ in / in a gel time / in / it is 7.8 minutes and / the temperature of 135 degrees C / 4.2 minutes and the temperature of 150 degrees C ] is 2.2 minutes.

[0028] Next, it replaced with the above-mentioned denaturation silicone as an ingredient which gives flexibility as the 3rd example of this invention, and polyether denaturation silicone (trade name TSF- as an example 4452) was added as a dispersant using silicone gel (trade name TSE3062 as an example), and it agitated, heating at the temperature of 80 degrees C like the above using a quantum everywhere, and dropping impregnating resin was obtained. The blending ratio of coal of the silicone gel in this 3rd example considered as 5 - 30 % of the weight, and polyether denaturation silicone carried out to 10 - 50% of the weight of silicone gel.

[0029] And it agitated until it carried out optimum dose addition of the same curing agent and same hardening accelerator as the 1st example and became homogeneity, and the hardened material which heats in a 130 degrees C - 200 degrees C temperature requirement for about 3 hours, and is applied to the 2nd example was obtained. When the property of the obtained hardened material was checked, the almost same hardened material property as the 1st and 2nd example and the crack-proof engine performance were obtained fundamentally.

[0030] It was checked that the gel time [ in / in the hardened material by \*\*\*\* 3 example / the temperature of 120 degrees C ] of a gel time [ in / in a gel time / in / it is 8.8 minutes and / the temperature of 135 degrees C / 3.5 minutes and the temperature of 150 degrees C ] is 1.8 minutes.

[0031]

[Effect of the Invention] As explained to the detail above, by using the heat-resistant dropping impregnating resin concerning this invention, the brittleness which dropping impregnating resin using conventional epoxy system resin as a material has can be abolished, and the mechanical strength and the temperature characteristic of a hardened material which were acquired can be improved sharply.

[0032] Furthermore, since the hardened material by this example is far shortened as compared with the gel time when the gel time which is time amount until dropping impregnating resin solidifies completely from a half-melting condition uses only the conventional epoxy resin, it can shorten sharply the processing time at the time of being able to aim at compaction of the setting time and applying to the production process of various electrical machinery and apparatus, and can raise productivity.

[0033] Moreover, by having raised the highest allowable temperature with compaction of the setting time, the versatility with which are satisfied of the demand accompanying miniaturization and high increase in power of various electrical machinery and apparatus is acquired, and the heat-resistant dropping impregnating resin which enables improvement in said mechanical strength to

maintain the dependability of an electrical machinery and apparatus to altitude conjointly can be offered.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

**JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The graph which shows the addition of the flexible grant agent of a hardened material and the relation of a heat-resistant temperature characteristic (TGI) which were obtained by this example.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

**JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.

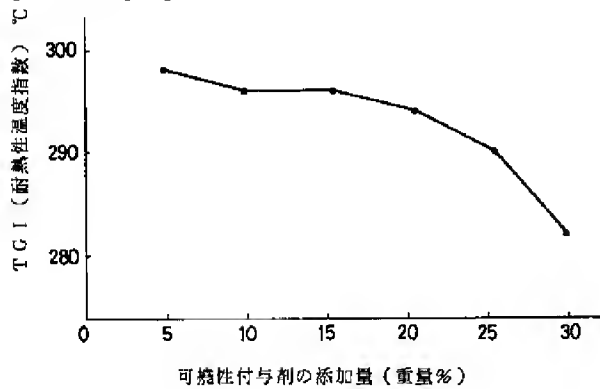
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DRAWINGS

---

[Drawing 1]



---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 ( J P )

(12) 公 開 特 許 公 報 ( A )

(11) 特許出願公開番号

特開平8-113698

(43) 公開日 平成 8 年 (1996) 5 月 7 日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 63/04	N K B			
C 0 8 G 59/18	N H Q			
C 0 8 K 5/15	N L A			
5/3445	N L B			
C 0 8 L 63/00	N J W			

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 5 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平6-251118	(71) 出願人	000006105 株式会社明電舎 東京都品川区大崎 2 丁目 1 番 17 号
(22) 出願日	平成 6 年 (1994) 10 月 18 日	(72) 発明者	沖横田 政雄 東京都品川区大崎 2 丁目 1 番 17 号 株式会 社明電舎内
		(72) 発明者	西澤 徹 東京都品川区大崎 2 丁目 1 番 17 号 株式会 社明電舎内
		(72) 発明者	浜村 武広 東京都品川区大崎 2 丁目 1 番 17 号 株式会 社明電舎内
		(74) 代理人	弁理士 志賀 富士弥 (外 1 名)

(54) 【発明の名称】 耐熱性滴下含浸樹脂

(57) 【要約】

【目的】 各種電気機器の絶縁用材料として使用される滴下含浸樹脂の硬化時間を短縮し、最高許容温度を高めて汎用性に優れ、しかも硬化物の機械的強度と温度特性を満足する耐熱性滴下含浸樹脂を提供することを目的とする。

【構成】 主剤としてビスフェノール型エポキシ樹脂に耐熱性を高めるためのクレゾールノボラック型エポキシ樹脂と、機械的強度及び温度特性を高めるための環状脂肪族型エポキシ樹脂と、可撓性を付与するためのシリコーンパウダーを用いて、この主剤を硬化剤・硬化促進剤とともに加熱、攪拌して得た耐熱性滴下含浸樹脂を提供する。又、シリコーンパウダーに代えて変性シリコーンもしくはシリコーンゲルを用いている。更にシリコーンゲルに分散剤としてポリエーテル変性シリコーンを添加した例を提供する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 主剤としてビスフェノール型エポキシ樹脂に耐熱性を高めるためのクレゾールノボラック型エポキシ樹脂と、機械的強度及び温度特性を高めるための環状脂肪族型エポキシ樹脂と、可撓性を付与するためのシリコーンパウダーを用いて、この主剤を硬化剤・硬化促進剤とともに加熱、攪拌して得たことを特徴とする耐熱性滴下含浸樹脂。

【請求項2】 上記ビスフェノール型エポキシ樹脂を40～75重量%、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂を10～40重量%、環状脂肪族型エポキシ樹脂を10～40重量%、シリコーンパウダーを5～30重量%の配合割合とした請求項1記載の耐熱性滴下含浸樹脂。

【請求項3】 上記可撓性を付与するためのシリコーンパウダーに代えて、変性シリコーンもしくはシリコーンゲルを用いた請求項1、2記載の耐熱性滴下含浸樹脂。

【請求項4】 主剤としてビスフェノール型エポキシ樹脂に耐熱性を高めるためのクレゾールノボラック型エポキシ樹脂と、機械的強度及び温度特性を高めるための環状脂肪族型エポキシ樹脂と、可撓性を付与するためのシリコーンゲルを用いて、この主剤を分散剤としてのポリエーテル変性シリコーン及び硬化剤・硬化促進剤とともに加熱、攪拌して得たことを特徴とする耐熱性滴下含浸樹脂。

【請求項5】 上記滴下含浸樹脂に加える硬化剤としてテトラヒドロフタリックアンハイドライドを用いるとともに硬化促進剤として4,4'-メチレン-ビス-(2-エチル-5-メチルイミダゾール)を用いて、硬化剤は主剤に対して0.8～1.2モルの割合とし、硬化促進剤は主剤に対して0.5～5重量%の割合とした請求項1、2,3,4記載の耐熱性滴下含浸樹脂。

【請求項6】 上記滴下含浸樹脂に硬化剤・硬化促進剤を重量比で1:1の割合になるように混合して添加した請求項1,2,3,4,5記載の耐熱性滴下含浸樹脂。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は各種電気機器の絶縁用材料として使用される短時間硬化性の耐熱性滴下含浸樹脂に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 一般に滴下含浸用の樹脂としては、通常耐熱性C種といわれる最高許容温度180℃以上のものが市販されているが、これらは完全に硬化するまでに約24時間という長い時間を要するので各種電気機器の生産効率を高める上での難点があり、特に生産性を向上させるという観点から硬化時間が短縮された耐熱性滴下含浸樹脂の開発が希求されている。

【0003】 他方で短時間で硬化可能な滴下含浸樹脂として、2～3時間程度で硬化可能なエポキシ系の樹脂があるが、これらは耐熱性F種といわれる最高許容温度1

55℃のものであるために汎用性が低く、各種電気機器のコンパクト化及び高出力化に伴って最高許容温度を高めて汎用性に優れた樹脂が求められている。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】 従来から硬化時間の短い素材として知られているエポキシ系の樹脂は、電気的特性並びに接着性に優れているだけでなく、樹脂自体及び硬化剤の化学構造を解明し、且つ材料を選択することによって種々の特性を有する硬化物が得られることから短時間硬化性の耐熱性滴下含浸樹脂として注目されている。

【0005】 しかしこのエポキシ系樹脂を素材として用いた滴下含浸樹脂の硬化物は、機械的強度の面で脆弱であることが難点となっており、特に耐熱性の高いものでは該硬化物にクラックが発生する惧れがあつて電気機器の信頼性を高度に維持する上での問題点となっている。

【0006】 本発明は上記の点に鑑みてなされたものであり、硬化時間の短縮がはかれるとともに最高許容温度を高めて汎用性にも優れ、しかも硬化物にクラック等が発生することなく、機械的強度と温度特性を満足する耐熱性滴下含浸樹脂を提供することを目的とするものである。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明は上記目的を達成するために、請求項1により、主剤としてビスフェノール型エポキシ樹脂に耐熱性を高めるためのクレゾールノボラック型エポキシ樹脂と、機械的強度及び温度特性を高めるための環状脂肪族型エポキシ樹脂と、可撓性を付与するためのシリコーンパウダーを用いて、この主剤を硬化剤・硬化促進剤とともに加熱、攪拌して得た耐熱性滴下含浸樹脂を提供する。

【0008】 上記ビスフェノール型エポキシ樹脂を40～75重量%、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂を10～40重量%、環状脂肪族型エポキシ樹脂を10～40重量%、シリコーンパウダーを5～30重量%の配合割合とする。更に可撓性を付与するためのシリコーンパウダーに代えて、変性シリコーンもしくはシリコーンゲルを用いた例を提供する。

【0009】 請求項4により、主剤としてビスフェノール型エポキシ樹脂に耐熱性を高めるためのクレゾールノボラック型エポキシ樹脂と、機械的強度及び温度特性を高めるための環状脂肪族型エポキシ樹脂と、可撓性を付与するためのシリコーンゲルを用いて、この主剤を分散剤としてのポリエーテル変性シリコーン及び硬化剤・硬化促進剤とともに加熱、攪拌して得た耐熱性滴下含浸樹脂を提供する。

【0010】 更に滴下含浸樹脂に加える硬化剤としてテトラヒドロフタリックアンハイドライドを用いるとともに硬化促進剤として4,4'-メチレン-ビス-(2-エチル-5-メチルイミダゾール)を用いており、硬化剤は主



剤に対して0.8～1.2モルの割合とし、硬化促進剤は主剤に対して0.5～5重量%の割合とする。又、上記滴下含浸樹脂に硬化剤・硬化促進剤を重量比で1：1の割合になるように混合して添加する。

#### 【0011】

【作用】かかる耐熱性滴下含浸樹脂によれば、可撓性付与剤としてのシリコンパウダー、変性シリコンもしくはシリコンゲルの添加量が増すと耐熱性温度指数が低下する傾向が見られたが、この可撓性付与剤の添加量が30%に達しても耐熱性温度指数は280℃以上であり、通常の耐熱性C種と呼称される滴下含浸樹脂に対応できるものが得られた。

【0012】又、得られた硬化物の耐クラック性試験によれば、従来のエポキシ樹脂のみを用いた硬化物試料の指数平均は3.8であったのに対して、本実施例を適用した硬化物の指数平均は1.1であり、機械的強度と温度特性の面で大幅に改善されていることが確認された。

【0013】更に本実施例による硬化物は、滴下含浸樹脂が半溶融状態から完全に固化するまでの時間であるゲルタイムが従来のエポキシ樹脂のみを用いた場合のゲルタイムに比してはるかに短縮されており、その結果、硬化時間の短縮がはかれて各種電気機器の製造工程に適用した際の処理時間が大幅に短縮され、これら機器の生産性が高められるという顕著な作用が得られる。

#### 【0014】

【実施例】以下本発明にかかる耐熱性滴下含浸樹脂の具体的な各種実施例を説明する。本実施例では主剤として硬化時間が短いエポキシ系樹脂に耐熱性を高める材料、機械的強度及び温度特性を高める材料、可撓性を付与する材料を採用し、この主剤を硬化剤・硬化促進剤とともに加熱、攪拌して得た耐熱性滴下含浸樹脂を基本構成としている。そして得られた滴下含浸樹脂の特性をチェックするため、得られた硬化物特性のチェックと耐クラック性試験を実施した。

【0015】先ず本発明にかかる滴下含浸樹脂の第1実施例の製作方法を述べると、主剤としてビスフェノール型エポキシ樹脂（一例として商品名エピコート828、エポキシ当量＝195）に耐熱性を高める材料としてクレゾールノボラック型エポキシ樹脂（一例として商品名YDCN701、エポキシ当量＝210）と機械的強度及び温度特性を高める材料として環状脂肪族型エポキシ

樹脂（一例として商品名ELR4221、エポキシ当量＝140）及び可撓性を付与する材料としてシリコンパウダー（一例として商品名KMP-594）を用いて、各所定量をステンレスビーカーにとり、80℃の温度で加熱しながら攪拌して滴下含浸樹脂を得た。尚、シリコンパウダーとして粒径が0.1～5.0μmのものを用了。

【0016】上記各成分の配合割合は、例えばビスフェノール型エポキシ樹脂を40～75重量%、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂を10～40重量%、環状脂肪族型エポキシ樹脂を10～40重量%、シリコンパウダーを5～30重量%とした。

【0017】次に硬化剤として酸無水物であるテトラヒドロフタリックアンハイドライド（一例として商品名HN-2200、エポキシ当量＝166）に、硬化促進剤として4,4'-メチレンビス-(2-エチル-5-メチルイミダゾール)（一例として商品名キュアゾール 2E4MZ・BIS）を適量添加し、均一になるまで攪拌した。硬化剤は主剤に対して0.8～1.2モルの割合とし、硬化促進剤は0.5～5重量%の割合とした。

【0018】そして前記主剤に硬化剤・硬化促進剤を重量比で1：1の割合になるように混合し、十分に攪拌してから130℃～200℃の温度範囲で約3時間加熱することによって本実施例にかかる硬化物を得た。

【0019】次に得られた硬化物の特性をチェックした。図1は横軸に可撓性付与剤（シリコンパウダー）の添加量（重量%）をとり、縦軸にNEMA規格による耐熱性温度指数（TGI）をとってプロットしたグラフである。

【0020】図1によれば、可撓性付与剤の添加量が増すほどに耐熱性温度指数が低下する傾向が見られた。しかし可撓性付与剤の添加量が30%に達しても耐熱性温度指数は280℃以上であり、通常の耐熱性C種と呼称される耐熱性200℃の滴下含浸樹脂に対応できるものであることが理解される。

【0021】更に得られた硬化物の耐クラック性試験を実施した。表1により上記耐クラック性試験の1～12サイクルにおける試験状態としての温度（℃）の変化、試験時間及び指数を一覧表として示す。

#### 【0022】

##### 【表1】

耐クラック性試験の条件

サイクル	試験状態(℃)	試験時間(分)	指数
1	※	—	0
2	25 → 5	10	1
3	5 → 25	30	2
4	25 → 15	10	3
5	-15 → 25	30	4
6	25 → -35	10	5
7	-35 → 25	30	6
8	25 → -55	10	7
9	-55 → 25	30	8
10	25 → -75	10	9
11	-75 → 25	30	10
12	※ ※	—	11

【0023】表1におけるサイクル1とは無負荷の状態を、サイクル2は前記硬化物を25(℃)から5(℃)まで10分間かけて降下した試験条件であることを示している。このサイクル2で硬化物にクラックが発生しなかった場合は、指数「1」となる。以下サイクル3からサイクル11まで表中に示した条件で耐クラック性試験を実施して、夫々指数「2」～指数「10」を求め、サイクル11以上の試験条件はすべてサイクル12として、指数は「11」とした。

【0024】尚、比較のために従来のエポキシ樹脂のみを用いた硬化物試料によって上記の耐クラック性試験を実施したところ、複数個の試料の指数平均は3.8であったのに対して、本実施例を適用した硬化物の指数平均は11、即ちサイクル11以上の試験条件をクリアしたことが確認された。

【0025】更に本実施例による硬化物は、温度120℃におけるゲルタイムが10.5分であり、温度135℃におけるゲルタイムは5.5分、温度150℃におけるゲルタイムは3.1分であることが確認された。このゲルタイムとは、滴下含浸樹脂が半溶融状態から完全に固化するまでの時間であり、従来のエポキシ樹脂のみを用いた場合のゲルタイムに比してはるかに短縮されていることが確認された。次に本発明の第2実施例として、可撓性を付与する材料としての上記シリコンパウダーに代えて変性シリコン(一例として商品名XC96-A4462、エポキシ当量=230)の所定量を用いて前記と同様に80℃の温度で加熱しながら攪拌して滴下含浸樹脂を得た。この第2実施例における変性シリコンの配合割合は5～30重量%とした。

【0026】そして第1実施例と同一の硬化剤と硬化促進剤を適量添加して均一になるまで攪拌し、130℃～200℃の温度範囲で約3時間加熱して第2実施例にかかる硬化物を得た。得られた硬化物の特性をチェックし

たところ、基本的に第1実施例とほぼ同一の硬化物特性と耐クラック性能が得られた。

【0027】本第2実施例による硬化物は、温度120℃におけるゲルタイムが7.8分であり、温度135℃におけるゲルタイムは4.2分、温度150℃におけるゲルタイムは2.2分であることが確認された。

【0028】次に本発明の第3実施例として、可撓性を付与する材料としての上記変性シリコンに代えてシリコーンゲル(一例として商品名TSE3062)を用い、分散剤としてポリエーテル変性シリコン(一例として商品名TSF-4452)を加え、各所定量を用いて前記と同様に80℃の温度で加熱しながら攪拌して滴下含浸樹脂を得た。この第3実施例におけるシリコーンゲルの配合割合は5～30重量%とし、ポリエーテル変性シリコーンはシリコーンゲルの10～50重量%とした。

【0029】そして第1実施例と同一の硬化剤と硬化促進剤を適量添加して均一になるまで攪拌し、130℃～200℃の温度範囲で約3時間加熱して第2実施例にかかる硬化物を得た。得られた硬化物の特性をチェックしたところ、基本的に第1、第2実施例とほぼ同一の硬化物特性と耐クラック性能が得られた。

【0030】本第3実施例による硬化物は、温度120℃におけるゲルタイムが8.8分であり、温度135℃におけるゲルタイムは3.5分、温度150℃におけるゲルタイムは1.8分であることが確認された。

【0031】

【発明の効果】以上詳細に説明したように、本発明にかかる耐熱性滴下含浸樹脂を用いることにより、従来のエポキシ系樹脂を素材として用いた滴下含浸樹脂が有している脆弱性をなくして、得られた硬化物の機械的強度と温度特性とを大幅に改善することができる。

【0032】更に本実施例による硬化物は、滴下含浸樹

脂が半溶融状態から完全に固化するまでの時間であるゲルタイムが従来のエポキシ樹脂のみを用いた場合のゲルタイムに比してはるかに短縮されているため、硬化時間の短縮がはかれて各種電気機器の製造工程に適用した際の処理時間を大幅に短縮して生産性を高めることができる。

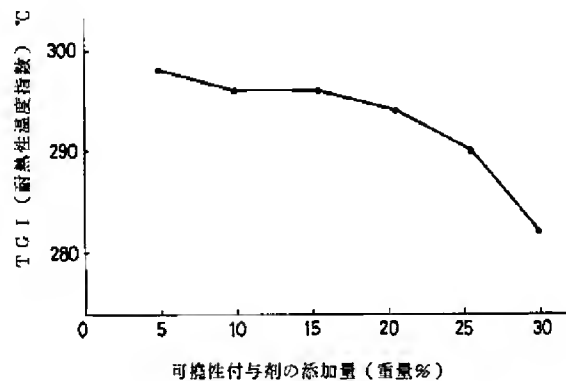
【0033】又、硬化時間の短縮とともに最高許容温度が高められたことにより、各種電気機器のコンパクト化

及び高出力化に伴う要求を満足する汎用性が得られて、前記機械的強度の向上とも相俟って電気機器の信頼性を高度に維持することを可能とする耐熱性滴下含浸樹脂を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本実施例により得られた硬化物の可撓性付与剤の添加量と耐熱性温度指数（TGI）の関係を示すグラフ。

【図1】



フロントページの続き

(51)Int. Cl. <sup>6</sup>

C08L 83/04

識別記号

LR Y

庁内整理番号

F I

技術表示箇所